

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

19 RÉPUBLIQUE FRANÇAISE
INSTITUT NATIONAL
DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE
PARIS

11 N° de publication :
(A n'utiliser que pour
le classement et les
commandes de reproduction.)

2.138.701

21 N° d'enregistrement national :
(A utiliser pour les paiements d'annuités,
les demandes de copies officielles et toutes
autres correspondances avec l'I.N.P.I.)

72.17215

13 DEMANDE
DE BREVET D'INVENTION

1^{re} PUBLICATION

22 Date de dépôt 15 mai 1972, à 14 h 30 mn.

41 Date de la mise à la disposition du
public de la demande B.O.P.I. - «Listes» n. 1 du 5-1-1973.

51 Classification internationale (Int. Cl.) B 01 j 9/00//C 01 c 1/00.

71 Déposant : Société dite : OSTERREICHISCHE STICKSTOFFWERKE AG., résidant
en Autriche.

Titulaire : *Idem* 71

74 Mandataire : Cabinet Pruvost.

54 Procédé et dispositif pour l'acheminement des gaz dans les installations de synthèse
catalytique à haute pression, par exemple pour la synthèse de l'ammoniaque.

72 Invention de :

33 32 31 Priorité conventionnelle : *Demande de brevet déposée en Autriche le 24 mai 1971,
n. A 4.434/71 au nom de la demanderesse.*

Dans les réacteurs pour la synthèse catalytique de l'ammoniaque à haute pression comportant plusieurs couches de catalyseur disposées en série, on sait que le gaz est refroidi entre les couches de catalyseur par échange thermique à l'intérieur du réacteur, avec le gaz frais admis, toutes les couches étant traversées par le gaz de synthèse dans le sens axial (voir les brevets autrichiens N° 216.533, 225.722 et 215.436).

Il existe également des installations dans lesquelles les premières couches de catalyseur sont traversées axialement, tandis que les couches de catalyseur terminales de grande longueur sont traversées radialement de l'intérieur vers l'extérieur (brevet autrichien N° 281.870), de sorte qu'ici encore on obtient entre autres, un échange thermique réalisé à l'intérieur du réacteur avec le gaz frais, entre les couches de catalyseur. L'avantage par rapport à des réacteurs ou fours à écoulement simplement radial tels que décrits dans le brevet d'Allemagne Fédérale N° 1.256.205, dans lesquels le gaz s'écoule alternativement de l'extérieur vers l'intérieur, puis de l'intérieur vers l'extérieur, réside dans le fait qu'on évite les difficultés d'activation lors de la réduction du catalyseur oxydé de synthèse de l'ammoniaque, telles qu'elles se présentent lors de l'acheminement radial du gaz de l'extérieur vers l'intérieur.

Par rapport à des fours traversés simplement dans le sens axial, l'avantage résiderait dans des pertes de charge plus faibles, car celles-ci ont un effet perturbateur en particulier dans la longue couche terminale de catalyseur, tandis que l'on considérerait la perte de charge dans les couches de catalyseur d'entrée relativement peu épaisses comme si faible qu'un acheminement radial du gaz dans ces couches de catalyseur ne fournirait aucun avantage. Au contraire, il était à craindre que dans les couches de catalyseur d'entrée particulièrement réactives, des pertes de rendement, dues à une surchauffe locale, se produiraient en particulier lors de l'utilisation d'un catalyseur de faible granulométrie, notamment dans les zones des couches de catalyseur voisines de l'axe.

Les recherches qui ont abouti à l'invention ont montré d'une façon en soi remarquable que, dans les fours avec échange thermique à l'intérieur du réacteur, entre les couches de catalyseur, la production d'ammoniaque peut être améliorée d'au moins 10-13% par rapport aux fours à écoulement axial usuels

lorsque toutes les couches de catalyseur sont traversées dans le sens radial de l'intérieur vers l'extérieur et lorsqu'on utilise un catalyseur ayant une granulométrie inférieure à 3 mm.

L'invention est matérialisée en conséquence dans un
5 procédé pour l'acheminement du gaz dans les installations de
synthèse catalytique à haute pression, par exemple pour la syn-
thèse de l'ammoniaque, comportant deux ou plusieurs couches ou
lits de catalyseur séparés l'un de l'autre, placés en série dans
le trajet d'acheminement du gaz, et des zones de refroidissement
10 ménagées entre les couches de catalyseur, dans lesquelles il se
produit un refroidissement indirect par du gaz de synthèse frais,
caractérisé en ce qu'on utilise un catalyseur ayant une granulo-
métrie inférieure à 3 mm et en ce que le gaz de synthèse en cours
de réaction traverse chacune des couches de catalyseur dans le
15 sens radial, depuis le centre du four vers la périphérie.

L'invention concerne également un dispositif avantageux
convenant en particulier pour assurer l'acheminement du gaz sui-
vant l'invention. Ce dispositif comprend une enceinte à haute
pression comportant une enveloppe de four dans laquelle il est
20 prévu, au-dessus de l'échangeur de chaleur principal, au moins
deux bacs à catalyseur et, entre ces bacs, des échangeurs de
chaleur assurant un échange thermique avec le gaz de synthèse
pénétrant dans le four, le cas échéant par l'intermédiaire de
l'échangeur de chaleur principal, ce dispositif étant caractéri-
25 sé en ce que chaque couche de catalyseur est disposée dans l'es-
pace annulaire ménagé entre deux tôles perforées cylindriques
qui sont concentriques aux organes médians de guidage du gaz et
parmi lesquelles la tôle perforée intérieure forme, avec l'orga-
ne central de guidage du gaz, et la tôle perforée extérieure
30 forme, avec l'enveloppe du four, un espace annulaire intérieur
servant à l'admission du gaz au catalyseur et un espace annulai-
re extérieur servant à l'évacuation du gaz, ces tôles perforées
étant refermées par un couvercle et un fond, les couvercles
comportant chacun un orifice annulaire de passage du gaz, voisin
35 de l'axe et débouchant dans l'espace annulaire intérieur, tandis
que les fonds comprennent chacun un orifice de passage du gaz,
voisin de l'enveloppe du four et relié à l'espace annulaire exté-
rieur.

Le dessin annexé, donné à titre non limitatif, représente
40 un dispositif de ce type comprenant trois couches de catalyseur.

Sur ce dessin, la référence 2 désigne une enceinte haute pression et 3 l'enveloppe intérieure du four. La référence 4 désigne l'espace annulaire ménagé entre cette enveloppe et l'enceinte haute pression, par lequel le gaz frais arrivant en 1 s'écoule vers le bas dans le four, pour parvenir dans l'échangeur de chaleur principal 5. On a indiqué en 6 les couches de catalyseur, qui se trouvent entre les tôles annulaires concentriques 10 et 11 et qui sont délimitées chaque fois par les couvercles 8 et les fonds 9. Il est prévu dans les couvercles 8, au voisinage des organes centraux 13 de guidage du gaz, des orifices d'entrée 14 et, dans les fonds 9, au voisinage de l'enveloppe 3 du four, des orifices 15 de passage du gaz. La référence 16 désigne l'espace annulaire intérieur servant à l'admission du gaz dans la couche de catalyseur, et l'espace annulaire 17 sert à l'évacuation du gaz à partir de cette couche de catalyseur. La référence 7 désigne les échangeurs de chaleur intermédiaires, et 18 le conduit de sortie des gaz hors du four. La référence 12 désigne des tôles annulaires concentriques rapportées par soudage sur les couvercles 8, qui pénètrent dans les lits de catalyseur et qui évitent un court circuitage du gaz lors de l'affaïssissement du catalyseur. L'organe central 13 de guidage du gaz est, dans cette construction de four, formé par un tube central s'étendant sur la hauteur de la couche de catalyseur inférieure. Après avoir quitté le premier échangeur de chaleur intermédiaire, il est formé par un tube central autour duquel sont disposés deux conduits concentriques de section annulaire. Le conduit annulaire extérieur sert à amener le gaz à l'échangeur de chaleur situé au-dessus, à partir duquel, après une inversion de 180°, le gaz est ramené vers le bas sur la hauteur du premier échangeur de chaleur, pour parvenir depuis cet endroit dans le tube central, dans lequel le brûleur 19 est disposé.

Le dispositif suivant l'invention peut également être muni d'organes d'admission qui permettent l'arrivée de gaz frais froid dans l'espace ménagé entre les tubes dans les échangeurs de chaleur intermédiaire 7, afin de permettre un réglage précis de la température dans ces échangeurs de chaleur 7.

Le gaz frais qui a traversé l'intervalle annulaire entre l'enceinte haute pression et l'enveloppe du four parvient dans l'espace ménagé entre les tubes de l'échangeur de chaleur principal 5, où il est chauffé par le gaz de synthèse qui s'échappe.

Il est acheminé par l'organe central de guidage du gaz 13 jusqu'à l'extrémité supérieure du four, et au cours de son mouvement il traverse les deux échangeurs de chaleur intermédiaire 7 et est encore chauffé. A partir de l'extrémité supérieure du four, il parvient par l'intermédiaire de l'orifice 14 de passage du gaz associé à la couche de catalyseur supérieure 6 dans l'espace annulaire intérieur 16 ménagé à l'intérieur de cette couche de catalyseur et, à partir de ce point, il traverse le catalyseur dans le sens radial et parvient, par l'espace annulaire 17 et l'orifice 15 de passage du gaz, dans l'échangeur de chaleur intermédiaire, dans lequel il est refroidi. Après avoir traversé de la même manière toutes les couches de catalyseur, le gaz quitte le four par l'échangeur de chaleur principal 5 et l'orifice de sortie 18.

L'exemple donné ci-après à titre non limitatif permettra de mieux comprendre encore comment l'invention peut être mise en oeuvre.

Exemple

En utilisant un dispositif tel que représenté sur le dessin pour la synthèse de l'ammoniaque, on fait passer à travers trois couches de catalyseur, dans une direction radiale et de l'intérieur vers l'extérieur, un mélange de gaz de synthèse, à raison de 75.000 m³ normaux par heure et sous une pression de 310 atmosphères. Le gaz présente, avant son entrée dans le four, la composition ci-après :

67,5 Vol. % H₂, 22,5 Vol.% N₂, 8,0 Vol.% matières inertes,
2,0 Vol. % NH₃

Le volume total du catalyseur représente 2,2 m³.

Le catalyseur est préparé à partir d'un mélange d'oxyde de fer de composition Fe₃O₄ renfermant 0,5% en poids d'oxyde de potassium, 2,8 - 3% en poids d'oxyde d'aluminium, 3,2 - 3,4% en poids d'oxyde de calcium et 1% en poids d'oxyde de magnésium, par réduction dans le four avec un mélange d'hydrogène et d'azote. Il présente une granulométrie moyenne de 2 mm. La synthèse de l'ammoniaque est effectuée sous une pression de 310 atmosphères et à une température de 400 à 500° C. Le gaz renferme à la sortie du four 17,81% en volume de NH₃.

Des modifications peuvent être apportées aux modes de mise

72 17215

5

2138701

en oeuvre décrits, dans le domaine des équivalences techniques,
sans s'écarter de l'invention.

REVENDEICATIONS

1.- Procédé pour l'acheminement du gaz dans les installations de synthèse catalytique à haute pression, par exemple pour la synthèse de l'ammoniaque, comportant deux ou plusieurs couches de catalyseur séparées l'une de l'autre, placées en série dans le trajet d'acheminement du gaz, et des zones de refroidissement intercalées entre les couches de catalyseur, dans lesquelles un refroidissement indirect au moyen de gaz de synthèse frais se produit, caractérisé en ce qu'on utilise un catalyseur d'une granulométrie inférieure à 3 mm et en ce que le gaz de synthèse en cours de réaction traverse chacune des couches de catalyseur dans une direction radiale, depuis le milieu du four vers sa périphérie.

2.- Dispositif pour la mise en oeuvre du procédé suivant la revendication 1, comportant une enceinte haute pression munie d'une enveloppe de four dans laquelle il est prévu, au-dessus de l'échangeur de chaleur principal, au moins deux bacs à catalyseur et, entre ces bacs, des échangeurs de chaleur en vue d'un échange thermique avec le gaz de synthèse pénétrant dans le four, éventuellement par l'intermédiaire de l'échangeur de chaleur principal, caractérisé en ce que chaque couche de catalyseur est disposée dans l'espace annulaire ménagé entre deux tôles perforées cylindriques qui sont concentriques aux organes centraux d'acheminement ou de guidage du gaz, parmi lesquelles la tôle perforée intérieure ménage avec l'organe central de guidage du gaz, et la tôle perforée extérieure ménage avec l'enveloppe du four, un espace annulaire intérieur servant à l'admission du gaz au catalyseur et un espace annulaire extérieur servant à l'évacuation du gaz, ces tôles perforées étant obturées par un couvercle et un fond appartenant au bac, les couvercles comportant chacun un orifice de passage du gaz voisin de l'axe, débouchant dans l'espace annulaire intérieur, tandis que les fonds comportent chacun un orifice de passage du gaz voisin de l'enveloppe et relié à l'espace annulaire extérieur.

72 17215

Pl. unique,

2138701

